

明 細 書

リチウム二次電池用非水電解液

技術分野

- [0001] 本発明は、電池のサイクル時や高温保存時の分解ガスの抑制などの電池特性に優れたリチウム二次電池を提供することができる高純度tert-アルキルベンゼン化合物を含有するリチウム二次電池用非水電解液、およびそれを用いたリチウム二次電池に関する。さらに、本発明のリチウム二次電池用非水電解液の添加剤として使用することが出来る高純度のtert-アルキルベンゼン化合物の製造方法に関する。

背景技術

- [0002] 近年、リチウム二次電池は小型電子機器などの駆動用電源として広く使用されている。リチウム二次電池は、主に正極、非水電解液および負極から構成されており、特に、 LiCoO_2 などのリチウム複合酸化物を正極とし、炭素材料又はリチウム金属を負極としたリチウム二次電池が好適に使用されている。リチウム二次電池用の非水電解液としては、エチレンカーボネート(EC)、プロピレンカーボネート(PC)などのカーボネート類が好適に使用されている。
- [0003] リチウム二次電池については、電池のサイクル特性および電気容量などの電池特性や安全性について、さらに優れた特性の付与が求められている。
- [0004] 特許文献1には、トリメリット酸エステル、フタル酸エステル等の芳香族エステル類や、トルエンやブチルベンゼン(tert-ブチルベンゼンも含む)等のアルキルベンゼン類を含有させることにより安全性に優れたリチウム二次電池が提供できることが開示されている。しかし、これらの化合物は、サイクル特性の面ではさらに改善が望ましく、特に充電電位4.2V以上の高電圧、高エネルギー密度で使用するリチウム二次電池では、サイクル特性や高温保存特性が十分ではなく、更にはガス発生による電池の膨れが大きいなどの問題があることが判明した。
- [0005] 特許文献2および特許文献3には、リチウム二次電池の電解質溶媒にtert-アルキルベンゼン化合物としてtert-ペンチルベンゼンなどのtert-アルキル基が炭素原子数5以上の化合物を添加することにより、リチウム二次電池のサイクル特性、電気容

量、保存特性などの特性の向上が図れる旨の記載がある。

[0006] 従来、tert-アルキルベンゼン化合物の製造法として、例えばtert-ペンチルベンゼンの場合には、(1)ベンゼンとハロゲン化イソアミルとを酸触媒の存在下に反応させる方法(非特許文献1)、(2)ベンゼンとイソアミレンとを酸触媒の存在下に反応させる方法(非特許文献2)、そして(3)アルカリ触媒存在下にクメンとエチレンとを反応させる方法(特許文献4)が知られている。

[0007] しかしながら、本発明の発明者の研究により、上記したような従来の合成方法で得られたtert-アルキルベンゼン化合物には、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が不純物として少量副生することが判明した。なお、高純度な前記ハロゲン化アルキルや高純度な前記イソアルキレンを入手することは容易ではなく、また高純度な原料を用いて反応を行っても、副反応として、上記の不純物の生成を避けることができないことも判明した。しかも、上記の不純物は、tert-アルキルベンゼン化合物と沸点が近いこと、一旦生成混入してしまうと、工業的に分離精製することが困難になり、反応生成物を通常の方法で分離精製処理しても、大幅に反応収率が低下するという問題がある。

[0008] 特許文献1:特開平10-275632号公報

特許文献2:特開2002-298909号公報

特許文献3:WO 02/29922号パンフレット

特許文献4:米国特許第4179472号明細書

非特許文献1:J. Am. Chem. Soc. , 74, 292(1952)

非特許文献2:J. Am. Chem. Soc. , 78, 2000(1956)

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、リチウム二次電池、特に充電電位が4.2V以上の高電圧、高エネルギー密度で使用されるリチウム二次電池の安全性を向上させると同時に、サイクル特性や高温保存特性を高いレベルで維持でき、ガス発生による電池の膨れを抑制した優れたリチウム二次電池の構成材料として有用な非水電解液を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0010] 本発明者は、従来法に従ってベンゼン化合物をアルキル化して合成したtert-アルキルベンゼン化合物を含む反応生成物を光ハロゲン化処理することにより、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物の混在量が少ない高純度のtert-アルキルベンゼン化合物を高収率で得ることができることを見出した。そして、このようにして得られる高純度のtert-アルキルベンゼン化合物を非水電解液に含有させることによりサイクル特性に優れたリチウム二次電池を製造することができることを見出した。

[0011] 従って、本発明は、非水溶媒に電解質が溶解されてなる非水電解液において、該非水電解液がtert-アルキルベンゼン化合物を0.1〜10質量%含有し、かつ炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物を0.00001〜0.05質量%の範囲内の量にて含むリチウム二次電池用の非水電解液にある。

本発明はまた、正極、負極、および非水溶媒に電解質が溶解されている非水電解液からなるリチウム二次電池において、該非水電解液が、上記の本発明の非水電解液であることを特徴とするリチウム二次電池にもある。

[0012] 本発明はまた、ベンゼン化合物のアルキル化反応により生成したtert-アルキルベンゼン化合物と少量の炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物とを含む反応生成物を光ハロゲン化処理する工程を含む高純度のtert-アルキルベンゼン化合物の製造法にもある。

発明の効果

[0013] 本発明の非水電解液を用いることにより、電池の安全性と同時に、サイクル特性や高温保存特性、更にはガス発生による電池の膨れを抑制したリチウム二次電池を提供することができる。

発明を実施するための最良の形態

[0014] ベンゼン化合物のアルキル化反応によりtert-アルキルベンゼン化合物と少量の前記不純物を含む反応生成物(粗tert-アルキルベンゼン化合物)の調製は、前記の非特許文献1、2に記載されているような公知の方法により実施することができる。

[0015] 本発明の高純度のtert-アルキルベンゼン化合物の製造法では、公知の方法により得られた粗tert-アルキルベンゼン化合物について、ハロゲン(例えば臭素)の存在下に、光源を使う光ハロゲン化反応を実施することにより、tert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1, 3-ジ-tert-ブチルベンゼンなどのtert-アルキルベンゼン化合物中に、不純物として含まれる前記不純物のベンゼン環に接続する第3級炭素に選択的にハロゲンを付加させて、前記tert-アルキルベンゼン化合物よりも高沸点の化合物を生成させる工程が含まれる。そして、このような工程による反応処理を施した反応混合物を精密蒸留などの一般的な精製処理を行うことにより、前記の不純物をほとんど含まない高純度tert-アルキルベンゼン化合物を得ることができる。この高純度tert-アルキルベンゼン化合物を添加剤とする非水電解液を用いたリチウム二次電池は、極めて優れたサイクル特性や保存特性を有している。

[0016] リチウム二次電池の非水電解液中における前記の不純物の影響については以下のように考えられる。

炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物は、ベンゼン環に炭化水素基が第2級炭素あるいは第1級炭素を介して結合しているベンゼン化合物に比べて、炭素置換基上の水素原子がラジカルとして引き抜かれやすく、酸化分解を受けやすく、このために、tert-アルキルベンゼン化合物と比較した場合でも、より低い酸化電位を有している。たとえば、tert-ブチルベンゼンやtert-ペンチルベンゼンの酸化電位が共に4.9Vおよび4.8Vであるのに対して、イソプロピルベンゼンやsec-ブチルベンゼンの酸化電位は共に4.6Vと低い。これらのフェニル基に隣接する第3級炭素を有するアルキルベンゼン化合物は電池の充放電を繰り返すにつれて、その一部が酸化分解あるいは重合し、ガス発生やサイクル特性の劣化、また重合物の溶解により電池の安全性の低下をもたらすことになる。

[0017] 前記の光ハロゲン化処理(光ハロゲン化反応)に用いられる光源としては、水銀ランプ、ハロゲンランプ、UVランプを使用することができる。また、光ハロゲン化処理は、常圧、加圧、減圧、いずれの条件でも実施することができる。

[0018] 光ハロゲン化処理に使用するハロゲンとしては、フッ素、塩素、臭素、ヨウ素を用い

ることができ、なかでも臭素が好ましい。ハロゲンの使用量はtert-アルキルベンゼン化合物中に含まれる上記不純物の含有量に対して、等モル〜5倍モルが好ましく、等モル〜3倍モルが更に好ましい。ハロゲン量が等モルより少ないと、未反応の、フェニル基に隣接する第3級炭素を有するアルキルベンゼン化合物が残る可能性がある。また、5倍モル以上になると、余剰なハロゲンを除去する必要が発生する。

[0019] 光ハロゲン化処理で使用されるハロゲンは、臭素やヨウ素は滴下したり、フッ素や塩素は不活性ガスで希釈して用いても良い。また、臭素やヨウ素の中に粗tert-ブチルベンゼン化合物を加えても、粗tert-ブチルベンゼン化合物の中に、臭素やヨウ素を加えてもよい。

[0020] 光ハロゲン化処理で利用する温度は、通常、 -20°C 〜 165°C 、好ましくは 10°C 〜 20°C 、最も好ましくは 40°C 〜 80°C である。また、処理は基本的に瞬時に完結するが、処理後の生成物中の余剰な前記ハロゲンやハロゲン化水素などのハロゲン化合物の除去のために、通常、1時間〜24時間、好ましくは5時間〜12時間反応を継続することが好ましい。

[0021] 光ハロゲン化処理に発生したハロゲン化水素は、(1)不活性ガスでバブリングする方法、(2)無機塩基化合物で処理する方法、(3)金属アルコキサイドで処理する方法、あるいは(4)アミンなどの塩基性を示す有機化合物で処理する方法により除去することができる。用いられる化合物の具体例を次に記載する。無機塩基化合物としては、炭酸ナトリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸カリウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、酸化マグネシウム、酸化カルシウム、酸化バリウムなどを用いることができ、金属アルコキサイドとしては、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、ナトリウムn-プロポキシド、ナトリウムiso-プロポキシド、ナトリウムn-ブトキシド、ナトリウムtert-ブトキシドなどを用いることができる。ナトリウムの代わりにリチウム、カリウム、カルシウム、アルミニウムなどを用いた金属アルコキシドを用いてもよい。アミンとしては、鎖状もしくは環状のアミンのいずれをも用いることができる。鎖状のアミンとしては、トリエチルアミン、トリブチルアミン、ジイソプロピルエチルアミンなどが挙げられ、環状のアミンとしてはピリジン、ピロリジン、N-メチルピロリジン、ピペリジン、N-メチルピペリジン、1, 8-ジアザビシクロ[5. 4. 0]-7-ウンデセンなどが挙げられる。これらの化合物は、水または

アルコールなどの溶媒と混合して使用することができる。

- [0022] 光ハロゲン化処理した後の生成物は次いで精密蒸留にかけ、高純度のtert-アルキルベンゼン化合物を回収することが望ましい。精密蒸留では、常圧または減圧下に、理論段数2〜100段の精密蒸留塔を用いることが好ましく、還流比は2〜50が好ましい。また、光ハロゲン化処理を行なう前の不純物が混在した粗tert-ブチルベンゼン化合物についても同様に、精密蒸留などの蒸留による分離生成処理を行なうことが望ましい。
- [0023] 本発明における除去対象の不純物(すなわち、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物)としては、イソプロピルベンゼン、sec-ブチルベンゼン、1, 2-ジメチルプロピルベンゼン、1-tert-ブチル-3-イソプロピルベンゼン、1, 2-ジメチルインダン、1, 3-ジメチルインダンから選ばれる少なくとも一種が挙げられる。特に鎖状のアルキルベンゼン化合物が不純物として混在するとサイクル特性が低下する。なお、上記ベンゼン化合物の炭素原子数が1乃至4の炭化水素基の代表的な例としては、直鎖状もしくは分岐状の炭化水素基、あるいは炭化水素の第3級炭素原子側の末端とは反対側の末端がベンゼン環に結合して、環が形成されていてもよい。なお、炭化水素の上記反対側の末端が上記の第3級炭素原子に結合することはない。
- [0024] 本発明の非水電解液に含まれる有効成分のtert-アルキルベンゼン化合物としては、tert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1, 3-ジ-tert-ブチルベンゼン、1, 4-ジ-tert-ブチルベンゼン、4-フルオロ-tert-ブチルベンゼン、4-tert-ブチルビフェニル、1, 3-ジ-tert-ペンチルベンゼン、1, 4-ジ-tert-ペンチルベンゼン、1-tert-ブチル-4-tert-ペンチルベンゼンが挙げられるが、tert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1, 3-ジ-tert-ブチルベンゼンから選ばれる少なくとも一種であることが好ましい。
- [0025] 本発明において除去対象とされる不純物(すなわち、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物)としては、有効成分であるtert-アルキルベンゼン化合物との組合せとして下記の化合物を挙げることができる。

- (1) tert-ブチルベンゼンについては、sec-ブチルベンゼン、イソプロピルベンゼン。
- (2) tert-ペンチルベンゼンについては、イソプロピルベンゼン、1, 2-ジメチルプロピルベンゼン、1, 2-ジメチルインダン、1, 3-ジメチルインダン、1-メチルテトラヒドロナフタレン。
- (3) 1, 3-ジ-tert-ブチルベンゼンについては、1-tert-ブチル-3-イソプロピルベンゼン。
- (4) 1, 4-ジ-tert-ブチルベンゼンについては、1-tert-ブチル-4-イソプロピルベンゼン。
- (5) 4-フルオロ-tert-ブチルベンゼンについては、4-フルオロ-イソプロピルベンゼン、4-フルオロ-sec-ブチルベンゼン。
- (6) 4-tert-ブチルビフェニルについては、4-sec-ブチルビフェニル。
- (7) 1, 3-ジ-tert-ペンチルベンゼンについては、1-tert-ペンチル-3-イソプロピルベンゼン。
- (8) 1, 4-ジ-tert-ペンチルベンゼンについては、1-tert-ペンチル-4-イソプロピルベンゼン。
- (9) 1-tert-ブチル-4-tert-ペンチルベンゼンについては、1-tert-ブチル-4-イソプロピルベンゼン。

[0026] 本発明の非水電解液に含まれる前記不純物(すなわち、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物)の量は、tert-アルキルベンゼン化合物の量に対する量として、0.5質量%以下が好ましく、0.3質量%以下が更に好ましく、0.1質量%以下が最も好ましい。ただし、tert-アルキルベンゼン化合物の量に対して該不純物は、0.001質量%以下である必要は特にはない。なお、非水電解液中のtert-アルキルベンゼン化合物の含有量は、0.1〜10質量%の範囲にあることが好ましく、0.5〜5質量%がさらに好ましく、1〜3質量%が特に好ましい。

[0027] 本発明の非水電解液中に含まれる非水溶媒の代表例としては、環状カーボネートと鎖状カーボネートが挙げられる。

[0028] 環状カーボネートとしては、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレ

ンカーボネート、ビニレンカーボネート、ジメチルビニレンカーボネート、ビニルエチレンカーボネート、フルオロエチレンカーボネートから選ばれる少なくとも一種であることが好ましい。なかでも、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ビニレンカーボネート、ビニルエチレンカーボネート、フルオロエチレンカーボネートから選ばれる少なくとも二種がより好ましく、特に、エチレンカーボネート、ビニレンカーボネート、フルオロエチレンカーボネートが含有されていることが最も好ましい。

[0029] 鎖状カーボネートとしては、ジメチルカーボネート(DMC)、メチルエチルカーボネート(MEC)、ジエチルカーボネート(DEC)、メチルプロピルカーボネート(MPC)、ジプロピルカーボネート(DPC)、メチルブチルカーボネート(MBC)、ジブチルカーボネート(DBC)などのアルキル基を有する鎖状カーボネートが挙げられる。但し、アルキル基部分は、直鎖状または分枝状のいずれであっても構わない。

[0030] 非水電解液中に含まれる環状カーボネートと鎖状カーボネートとの含有割合は、容量比として、20:80〜40:60とすることが好ましく、20:80〜35:65とするのがさらに好ましい。

[0031] 鎖状カーボネートのうち、粘度が低くなるようにジメチルカーボネートやメチルエチルカーボネートのようなメチル基を含有する鎖状カーボネートを使用することが好ましく、なかでも、粘度が低く、−20℃でも液体であって、沸点が100℃以上の非対称な鎖状カーボネートのメチルエチルカーボネートを使用することが好ましい。また、非対称な鎖状カーボネート(例、メチルエチルカーボネート)と、対称な鎖状カーボネート(例、ジメチルカーボネートおよびジエチルカーボネート)とを、容量比にて、100:0〜51:49の範囲の量、特に100:0〜70:30の範囲の量で組合せて用いることも好ましい。

[0032] 本発明で使用される電解質塩としては、例えば、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 LiClO_4 、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{C}_2\text{F}_5)_2$ 、 $\text{LiC}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_3$ 、 $\text{LiPF}_4(\text{CF}_3)_2$ 、 $\text{LiPF}_3(\text{C}_2\text{F}_5)_3$ 、 $\text{LiPF}_3(\text{CF}_3)_3$ 、 $\text{LiPF}_3(\text{iso-C}_3\text{F}_7)_3$ 、 $\text{LiPF}_5(\text{iso-C}_3\text{F}_7)$ などの鎖状アルキル基を有するリチウム塩や、 $(\text{CF}_3)_2(\text{SO}_2)_2\text{NLi}$ 、 $(\text{CF}_3)_2(\text{SO}_2)_2\text{NLi}$ などの環状のアルキレン鎖を含有するリチウム塩が挙げられる。特に好ましい電解質塩としては、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ であり、最も好ましい電解質塩としては、 LiPF_6 である。これらの電解質塩は

、1種類で使用してもよく、2種類以上組み合わせて使用してもよい。これら電解質塩の好ましい組み合わせとしては、 LiPF_6 と LiBF_4 との組み合わせ、 LiPF_6 と $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ との組み合わせ、 LiBF_4 と $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ との組み合わせなどが挙げられる。特に好ましくは LiPF_6 と LiBF_4 との組み合わせである。本発明では電解質塩を混合して用いる場合には、任意の割合で混合することができるが、好ましくは、 LiPF_6 と組み合わせて使用される他の電解質塩が全電解質塩に占める割合は、モル比にして、0.01%以上であり、より好ましくは0.05%以上であり、さらに好ましくは0.1%以上である。また45%以下が好ましく、より好ましくは20%以下であり、さらに好ましくは10%以下であり、最も好ましくは5%以下である。これら全電解質塩は、前記の非水溶媒に通常0.3M以上が好ましく、0.5M以上がより好ましく、さらに0.7M以上が好ましく、0.8M以上が最も好ましい。また、これらの電解質塩の濃度は、2.5M以下が好ましく、2.0M以下がより好ましく、さらに1.6M以下が好ましく、1.2M以下が最も好ましい。

- [0033] 本発明の非水電解液は、例えば、環状カーボネートと鎖状カーボネートを含む非水溶媒を混合し、これに電解質、そして不純物(すなわち、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物)を除去して得た高純度のtert-アルキルベンゼン化合物を溶解することにより得ることができる。
- [0034] 本発明の非水電解液に、例えば、空気や二酸化炭素を含ませることにより、電解液の分解によるガス発生抑制や、サイクル特性や保存特性などの電池性能を向上させることができる。
- [0035] 非水電解液中に二酸化炭素または空気を含有(溶解)させる方法としては、(1)予め非水電解液を電池内に注液する前に空気または二酸化炭素含有ガスと接触させて含有させる方法、(2)注液後、電池封口前または後に空気または二酸化炭素含有ガスを電池内に含有させる方法のいずれでもよく、またこれらを組み合わせて使用することもできる。空気や二酸化炭素含有ガスは、極力水分を含まないものが好ましく、露点 -40°C 以下であることが好ましく、露点 -50°C 以下であることが特に好ましい。
- [0036] 本発明の非水電解液は、二次電池、特にリチウム二次電池の構成部材として使用

される。二次電池を構成する非水電解液以外の構成部材については特に限定されず、従来使用されている種々の構成部材を使用できる。

- [0037] 例えば、正極活物質としてはコバルト、マンガン、ニッケルを含有するリチウムとの複合金属酸化物が使用される。これらの正極活物質は、1種類だけを選択して使用しても良いし、2種類以上を組み合わせ用いても良い。このような複合金属酸化物としては、例えば、 LiCoO_2 、 LiMn_2O_4 、 LiNiO_2 、 $\text{LiCo}_{1-x}\text{Ni}_x\text{O}_2$ ($0.01 < x < 1$)、 $\text{LiCo}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ 、 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ などが挙げられる。また、 LiCoO_2 と LiMn_2O_4 、 LiCoO_2 と LiNiO_2 、 LiMn_2O_4 と LiNiO_2 のように適当に混ぜ合わせて使用しても良い。以上のように、正極活物質としては、 LiCoO_2 、 LiMn_2O_4 、 LiNiO_2 のような充電終了後の開回路電圧がLi基準で4.3V以上で使用可能なリチウム複合金属酸化物が好ましく、 $\text{LiCo}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ 、 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ のような4.4V以上で使用可能なリチウム複合金属酸化物がより好ましい。正極材料として最も好ましくは、CoやNiを含有するリチウム複合金属酸化物を用いることであり、リチウム複合金属酸化物の一部は他元素で置換されていても良く、例えば、 LiCoO_2 のCoの一部をSn、Mg、Fe、Ti、Al、Zr、Cr、V、Ga、Zn、Cuなどで置換されていても良い。

- [0038] 正極の導電剤として、化学変化を起こさない電子伝導材料であれば何でも良い。例えば、天然黒鉛(鱗片状黒鉛など)、人造黒鉛などのグラファイト類、アセチレンブラック、ケッチェンブラック、チェンネルブラック、ファーネスブラック、ランプブラック、サーマルブラックなどのカーボンブラック類などが挙げられる。また、グラファイト類とカーボンブラック類を適宜混合して用いても良い。導電剤の正極合剤への添加量は、1〜10質量%が好ましく、特に、2〜5質量%が好ましい。

- [0039] 正極は、前記の正極活物質をアセチレンブラック、カーボンブラックなどの導電剤およびポリテトラフルオロエチレン(PTFE)、ポリフッ化ビニリデン(PVDF)、スチレンとブタジエンの共重合体(SBR)、アクリロニトリルとブタジエンの共重合体(NBR)、カルボキシメチルセルロース(CMC)などの結着剤と混練して正極合剤とした後、この正極材料を集電体としてのアルミニウム箔やステンレス製のラス板に圧延して、50℃〜250℃程度の温度で2時間程度真空下で加熱処理することにより作製される。

- [0040] 負極(負極活物質)としては、リチウムを吸蔵・放出可能な材料が使用され、例えば

、リチウム金属やリチウム合金、および炭素材料〔熱分解炭素類、コークス類、グラファイト類(人造黒鉛、天然黒鉛など)、有機高分子化合物燃焼体、炭素繊維〕、スズやスズ化合物、ケイ素やケイ素化合物が使用される。炭素材料においては、特に、格子面(002)の面間隔(d_{002})が0.340nm以下であることが好ましく、0.335〜0.340nmである黒鉛型結晶構造を有するグラファイト類を使用することがより好ましい。これらの負極活物質は、一種類だけを選択して使用しても良いし、二種類以上を組み合わせ用いても良い。なお、炭素材料のような粉末材料はエチレンプロピレンジエンターポリマー(EPDM)、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)、ポリフッ化ビニリデン(PVDF)、スチレンとブタジエンの共重合体(SBR)、アクリロニトリルとブタジエンの共重合体(NBR)、カルボキシメチルセルロース(CMC)などの結着剤と混練して負極合剤として使用される。負極の製造方法は、特に限定されず、上記の正極の製造方法と同様な方法により製造することができる。

[0041] リチウム二次電池の構造は特に限定されるものではなく、正極、負極および単層又は複層のセパレータを有するコイン型電池、さらに、正極、負極およびロール状のセパレータを有する円筒型電池や角型電池などが一例として挙げられる。なお、セパレータとしては公知のポリプロピレン、ポリエチレン等のポリオレフィンの微多孔膜、織布、不織布などが使用される。また、電池用セパレータは単層多孔質フィルム及び積層多孔質フィルムのいずれの構成であっても良い。本発明で使用される電池用セパレータは、製造条件によっても異なるが、透気度が50〜1000秒/100ccが好ましく、100〜800秒/100ccがより好ましく、300〜500秒/100ccが最も好ましい。透気度が高すぎるとリチウムイオン伝導性が低下するために電池用セパレータとしての機能が十分でなく、低すぎると機械的強度が低下するので上記範囲とするのが好ましい。また、空孔率は30〜60%が好ましく、35〜55%がより好ましく、40〜50%が最も好ましい。特に空孔率をこの範囲とすると、電池の容量特性が向上するので好ましい。さらに、電池用セパレータの厚みはできるだけ薄い方がエネルギー密度を高くできるため好ましいが、機械的強度、性能等の両面から5〜50 μ mが好ましく、10〜40 μ mがより好ましく、15〜25 μ mが最も好ましい。

[0042] 本発明においては、有効な添加剤の効果をを得るために、電極材料層の密度が重

要である。特に、アルミニウム箔上に形成される正極合剤層の密度は $3.2\sim 4.0\text{g}/\text{cm}^3$ であることが好ましく、更に好ましくは $3.3\sim 3.9\text{g}/\text{cm}^3$ 、最も好ましくは $3.4\sim 3.8\text{g}/\text{cm}^3$ である。一方、銅箔上に形成される負極合剤層の密度は $1.3\sim 2.0\text{g}/\text{cm}^3$ 、更に好ましくは $1.4\sim 1.9\text{g}/\text{cm}^3$ 、最も好ましくは $1.5\sim 1.8\text{g}/\text{cm}^3$ の間である。

- [0043] また、本発明のリチウム二次電池で用いる好適な正極の電極層の厚さ(集電体片面当たり)は、 $30\sim 120\mu\text{m}$ 、好ましくは $50\sim 100\mu\text{m}$ であり、前記負極の電極層の厚さ(集電体片面当たり)は、 $1\sim 100\mu\text{m}$ 、好ましくは $3\sim 70\mu\text{m}$ である。
- [0044] 本発明のリチウム二次電池は、充電終止電圧が 4.2V より大きい場合にも長期間にわたり、優れたサイクル特性を示し、特に充電終止電圧が 4.3V 以上のような場合にも優れたサイクル特性を有している。放電終止電圧は、 2.5V 以上とすることができ、さらに 2.8V 以上とすることができる。電流値については特に限定されるものではないが、通常 $0.1\sim 3\text{C}$ の定電流放電で使用される。また、本発明におけるリチウム二次電池は、 -40°C 以上で充放電することができるが、好ましくは 0°C 以上である。また、 100°C 以下で充放電することができるが、好ましくは 80°C 以下である。
- [0045] 本発明のリチウム二次電池の内圧上昇の対策として、封口板に安全弁を用いることができる。その他、電池缶やガasketなどの部材に切り込みを入れる方法も利用することができる。この他、従来から知られている種々の安全素子(過電流防止素子として、ヒューズ、バイメタル、PTC素子の少なくとも1種)を備えつけていることが好ましい。
- [0046] 本発明のリチウム二次電池は必要に応じて複数本を直列および/または並列に組み電池パックに収納される。電池パックには、PTC素子、温度ヒューズ、ヒューズおよび/または電流遮断素子などの安全素子のほか、安全回路(各電池および/または組電池全体の電圧、温度、電流などをモニターし、電流を遮断する機能を有する回路)を設けても良い。
- [0047] 本発明のリチウム二次電池が使用される機器は、携帯電話、ノートパソコン、PDA、ビデオムービー、コンパクトカメラ、ヒゲソリ、電動工具、自動車などに使用されることが好ましい。特に、充電電流が 0.5A 以上になる機器は、本発明のリチウム二次電池

との組み合わせにより信頼性が向上するので好ましい。

実施例

[0048] 次に、実施例を挙げて、本発明を具体的に説明する。

[0049] [実施例A-1]

非特許文献1の記載の製法に従って、合成、蒸留して、粗tert-ペンチルベンゼン(比較例X-1)を得た。3Lフラスコに粗tert-ペンチルベンゼン2.0kg(13.5モル)を仕込み、液中に窒素ガスを0.05L/分でバブリングしながら攪拌し続け、光源として、300Wのハロゲンランプを使用し、臭素106g(0.66モル)を55℃～60℃で60分かけて滴下した。この時、反応中に発生するHBrガスは、2時間かけて0.1L/分で窒素ガスを反応液にバブリングしながら系外に排出し、中和処理した。この反応液の温度を30℃まで冷却した後、28質量%ナトリウムメトキシド/メタノール溶液71.5g(0.37モル)を30分かけて滴下し、30分攪拌して中和処理した後、析出したNaBrをろ別分離した。そのろ液2.15kgを理論段数10段の蒸留装置にて、圧力20torr、還流比2で精密蒸留して、80%主留分としての高純度tert-ペンチルベンゼン1.6kgを得た。高純度tert-ペンチルベンゼン(実施例A-1)の分析値を表1に示す。

不純物は、試料をガスクロマトグラフィー(SHIMADZU製GC-14B、カラム:HR-1701、ディテクター:FID)を用い、インジェクション温度230℃、ディテクター温度200℃、50℃で5分保持後、10℃/分で180℃まで昇温し、15分間保持して測定した。各不純物の含有量は、内部標準法にて定量した。

水分量の測定は、カールフィッシャー法により行った。

全ハロゲン量の測定は、以下の方法で行った。すなわち、試料(粗tert-ペンチルベンゼンまたは精tert-ペンチルベンゼン)を酸水素炎燃焼処理して、気体を炭酸ナトリウム水溶液に吸収させ、吸収液中の塩素イオンや臭素イオンをイオンクロマトで測定した。

[0050] [実施例B-1]

粗tert-ペンチルベンゼン(市販品:東京化成(株)製)(比較例Y-1)を蒸留して用いたほかは、実施例A-1と同様にして製造した。得られた高純度tert-ペンチルベンゼン(実施例B-1)の分析値を表1に示す。実施例A-1と実施例B-1とを比較して分

かるように、市販品と非特許文献1記載の方法により得られたtert-ペンチルベンゼンとでは、不純物の種類が異なることが分かった。この理由は、製造法の違いによるものと考えられる。

[0051] [実施例B-2]

粗tert-ブチルベンゼン(東京化成(株)製)(比較例Y-2)を用いたほかは、実施例B-1と同様にして高純度tert-ブチルベンゼンを製造した。得られた高純度tert-ブチルベンゼン(実施例B-2)の分析値を表1に示す。

[0052] [実施例B-3]

粗1, 3-ジ-tert-ブチルベンゼン(東京化成(株)製)(比較例Y-3)を用いたほかは、実施例B-1と同様にして高純度tert-ブチルベンゼンを製造した。得られた高純度1, 3-ジ-tert-ブチルベンゼン(実施例B-3)の分析値を表1に示す。

[0053] [実施例C-1]

[非水電解液の調製]

EC:ビニレンカーボネート(VC):MEC(容量比)=28:2:70の非水溶媒を調製し、これに LiPF_6 を1Mの濃度になるように溶解して非水電解液を調製した後、さらに実施例A-1の高純度tert-ペンチルベンゼンを非水電解液に対して3質量%となるように加えた。

[0054] [リチウム二次電池の作製および電池特性の測定]

LiCoO_2 (正極活物質)を90質量%、アセチレンブラック(導電剤)を5質量%、ポリフッ化ビニリデン(結着剤)を5質量%の割合で混合し、これに1-メチル-2-ピロリドンを加えてスラリー状にしてアルミ箔上に塗布した。その後、これを乾燥し、加圧成形して正極を調製した。格子面(002)の面間隔(d_{002})が0.335nmである黒鉛型結晶構造を有する人造黒鉛(負極活物質)を95質量%、ポリフッ化ビニリデン(結着剤)を5質量%の割合で混合し、これに1-メチル-2-ピロリドンを加えてスラリー状にして銅箔上に塗布した。その後、これを乾燥し、加圧成形して負極を調製した。そして、ポリエチレンからなる微多孔性フィルムのセパレータ(厚さ20 μm)を用い、上記の非水電解液を注入後、電池封口前に露点-60°Cの二酸化炭素を電池内に含有させて18650サイズの円筒電池(直径18mm、高さ65mm)を作製した。電池には、圧力開

放口および内部電流遮断装置(PTC素子)を設けた。この時、正極の電極密度は、 $3.5\text{g}/\text{cm}^3$ であり、負極の電極密度は $1.6\text{g}/\text{cm}^3$ であった。正極の電極層の厚さ(集電体片面当たり)は $70\mu\text{m}$ であり、負極の電極層の厚さ(集電体片面当たり)は $60\mu\text{m}$ であった。

この18650電池を用いて、サイクル試験するために、高温(45°C)下、 $2.2\text{A}(1\text{C})$ の定電流で 4.3V まで充電した後、終止電圧 4.3V として定電圧下に合計3時間充電した。次に $2.2\text{A}(1\text{C})$ の定電流下、終止電圧 3.0V まで放電し充放電を繰り返した。初期放電容量(mAh)は、実施例A-1の精tert-ペンチルベンゼンを添加せず、その代わりに比較例X-1の粗tert-ペンチルベンゼンを非水電解液に対して3質量%添加した $1\text{M LiPF}_6 + \text{EC}/\text{VC}/\text{MEC}$ (容量比) $=28/2/70$ を電解液として用いた場合(比較例Z-1)と比較して同等であった。100サイクル後の電池特性を測定したところ、初期放電容量を100%としたときの放電容量維持率は92.1%であった。また、100サイクル後のガス発生量は、比較例X-1を使用したときと比較して明らかに少ないことが分かった。18650電池の作製条件および電池特性を表2に示す。

[0055] [実施例C-2～実施例C-4]

実施例B-1～実施例B-3の高純度tert-アルキルベンゼンを非水電解液に対して、3質量%使用したほかは実施例C-1と同様に円筒型電池を作製した。18650サイズの円筒型電池の材料条件および100サイクル後の放電容量維持率を表2に示す。

[0056] [実施例C-5]

実施例A-1の高純度tert-アルキルベンゼンを非水電解液に対して、1質量%使用したほかは実施例C-1と同様に円筒型電池を作製した。18650サイズの円筒型電池の材料条件および100サイクル後の放電容量維持率を表2に示す。

[0057] [実施例C-6]

$\text{EC}:\text{VC}:\text{MEC}$ (容量比) $=28:2:70$ の非水溶媒を調製し、これに LiPF_6 を 0.95M 、 LiBF_4 を 0.05M の濃度になるように溶解して非水電解液を調製した後、さらに実施例A-1の高純度tert-ペンチルベンゼンを非水電解液に対して3重量%使用し

たほかは実施例C-1と同様に円筒型電池を作製した。18650サイズの円筒型電池の材料条件および100サイクル後の放電容量維持率を表2に示す。

[0058] [実施例D-1および実施例D-2]

正極活物質を LiCoO_2 から $\text{LiCo}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ に代え、実施例A-1および実施例B-2の高純度tert-アルキルベンゼンを非水電解液に対して、3重量%使用したほかは実施例C-1と同様に円筒型電池を作製した。18650サイズの円筒型電池の材料条件および100サイクル後の放電容量維持率を表3に示す。

[0059] [比較例Z-1]

比較例X-1の粗tert-ペンチルベンゼンを非水電解液に対して、3質量%使用したほかは実施例1と同様に円筒型電池を作製した。18650サイズの円筒型電池の材料条件および100サイクル後の放電容量維持率を表2に示す。

[0060] [比較例Z-2〜比較例Z-4]

比較例Y-1〜比較例Y-3の粗tert-アルキルベンゼンを非水電解液に対して、3質量%使用したほかは実施例1と同様に円筒型電池を作製した。18650サイズの円筒型電池の材料条件および100サイクル後の放電容量維持率を表2に示す。

[0061] [表1]

表1

実施例	tert-アルキルベンゼン 化合物	フェニル基に隣接する第3級炭素を有する アルキルベンゼン化合物 (%)	純度 (%)	水分 (ppm)	ハロゲン (ppm)
A-1	tert-ペンチルベンゼン (合成品1)	1,2-ジメチルプロピルベンゼン(0.05) ジメチルインダン(<0.01) イソプロピルベンゼン(<0.01) 1-メチルテトラヒドロナフタレン(<0.01)	>99.9	20	<40
B-1	tert-ペンチルベンゼン (東京化成品)	イソプロピルベンゼン(0.05) ジメチルインダン(<0.01)	>99.9	20	<30
B-2	tert-ブチルベンゼン (東京化成品)	sec-ブチルベンゼン(0.05) イソプロピルベンゼン(<0.01)	>99.9	20	<40
B-3	1,3-ジ-tert-ペンチルベンゼン (合成品4)	1-tert-ブチル-3-イソプロピルベンゼン (0.08)	99.7	20	<40
比較例					
X-1	tert-ペンチルベンゼン (合成品1)	1,2-ジメチルプロピルベンゼン(3.1) ジメチルインダン(0.4) イソプロピルベンゼン(0.2) 1-メチルテトラヒドロナフタレン(0.1)	95.9	150	<40
Y-1	tert-ペンチルベンゼン (東京化成品)	イソプロピルベンゼン(1.3) ジメチルインダン(0.4)	98.1	120	<10
Y-2	tert-ブチルベンゼン (東京化成品)	sec-ブチルベンゼン(0.8) イソプロピルベンゼン(0.2)	98.6	150	<40
Y-3	1,3-ジ-tert-ペンチルベンゼン (合成品4)	1-tert-ブチル-3-イソプロピルベンゼン(1.6)	97.8	150	<40

[0062] [表2]

表2

実施例	tert-アルキル ベンゼン化合物	添加量 重量(%)	電解液組成(容量比)	100サイクル 放電容量 維持率(%)
C-1	A-1	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	92.1
C-2	B-1	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	91.7
C-3	B-2	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	91.1
C-4	B-3	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	90.7
C-5	A-1	1	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	91.4
C-6	A-1	3	0.95M LiPF ₆ + 0.05M LiBF ₄ EC/VC/MEC=28/2/70	92.5
比較例				
Z-1	X-1	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	87.2
Z-2	Y-1	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	87.4
Z-3	Y-2	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	85.2
Z-4	Y-3	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	86.4

[0063] [表3]

表3

実施例	正極	tert-アルキル ベンゼン化合物	添加量 重量(%)	電解液組成(容量比)	100サイクル 放電容量 維持率(%)
D-1	$\text{LiCo}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$	A-1	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	91.6
D-2	$\text{LiCo}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$	B-2	3	1M LiPF ₆ EC/VC/MEC=28/2/70	91.5

請求の範囲

- [1] 非水溶媒に電解質が溶解されてなる非水電解液において、該非水電解液がtert-アルキルベンゼン化合物を0.1〜10質量%含有し、かつ炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物をtert-アルキルベンゼン化合物に対して0.001〜0.5質量%含むリチウム二次電池用の非水電解液。
- [2] tert-アルキルベンゼン化合物がtert-ブチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が、sec-ブチルベンゼン及び／又はイソプロピルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [3] tert-アルキルベンゼン化合物がtert-ペンチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が、イソプロピルベンゼン、1,2-ジメチルプロピルベンゼン、1,2-ジメチルインダン、1,3-ジメチルインダン、及び／又は1-メチルテトラヒドロナフタレンである請求項1に記載の非水電解液。
- [4] tert-アルキルベンゼン化合物が1,3-ジ-tert-ブチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が1-tert-ブチル-3-イソプロピルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [5] tert-アルキルベンゼン化合物が1,4-ジ-tert-ブチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が1-tert-ブチル-4-イソプロピルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [6] tert-アルキルベンゼン化合物が4-フルオロ-tert-ブチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が、4-フルオロ-イソプロピルベンゼン及び／又は4-フルオロ-sec-ブチルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [7] tert-アルキルベンゼン化合物が4-tert-ブチルビフェニルであって、炭素原子数

が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が4-sec-ブチルビフェニルである請求項1に記載の非水電解液。

- [8] tert-アルキルベンゼン化合物が1, 3-ジ-tert-ペンチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が1-tert-ペンチル-3-イソプロピルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [9] tert-アルキルベンゼン化合物が1, 4-ジ-tert-ペンチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が1-tert-ペンチル-4-イソプロピルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [10] tert-アルキルベンゼン化合物が1-tert-ブチル-4-tert-ペンチルベンゼンであって、炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物が1-tert-ブチル-4-イソプロピルベンゼンである請求項1に記載の非水電解液。
- [11] 正極、負極、および非水溶媒に電解質が溶解されている非水電解液からなるリチウム二次電池において、該非水電解液が、請求項1に記載の非水電解液であることを特徴とするリチウム二次電池。
- [12] ベンゼン化合物のアルキル化反応により生成したtert-アルキルベンゼン化合物と少量の炭素原子数が1乃至4の炭化水素基が第3級炭素原子を介してベンゼン環に接続しているベンゼン化合物とを含む反応生成物を光ハロゲン化処理する工程を含む高純度のtert-アルキルベンゼン化合物の製造法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/005022

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ H01M10/40, C07C7/148, 15/02

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ H01M10/40, 6/16, C07C7/148, 15/02

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2005

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2005 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 2004-63367 A (Ube Industries, Ltd.), 26 February, 2004 (26.02.04), Claims; Par. No. [0016] (Family: none)	1-5, 8-9, 11 6, 10
X A	WO 2002/59999 A1 (Ube Industries, Ltd.), 01 August, 2002 (01.08.02), Page 2, line 1 to page 3, line 15; page 6, lines 18 to 37 (Family: none)	1-5, 7-9, 11 6, 10

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
10 June, 2005 (10.06.05)Date of mailing of the international search report
28 June, 2005 (28.06.05)Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

It is examined whether "a tert-alkyl benzene compound" as the technical feature common to claims 1-12 can be a "special technical feature". Since it is mentioned in paragraph [0005] of the description that a tert-alkyl benzene compound is well-known by documents such as JP 2002-298909 A, the compound is not novel and thus cannot be a "special technical feature".

Consequently, it is considered that there exists no "special technical feature" so linking a group of inventions recited in claims 1-12 as to form a single general inventive concept. It is therefore obvious that the group of inventions of claims 1-12 do not satisfy the requirement of unity of invention, and (continued to extra sheet)

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☐ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☒ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.: 1 - 11

Remark on Protest

- ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/005022

Continuation of Box No. III of continuation of first sheet (2)

this international application contains two inventions: the invention of claims 1-11 and the invention of claim 12.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ H01M10/40, C07C7/148, 15/02

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ H01M10/40, 6/16, C07C7/148, 15/02

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X A	JP 2004-63367 A(宇部興産株式会社) 2004. 02. 26, 【特許請求の範囲】, 【0016】 (ファミリーなし)	1-5, 8-9, 11 6, 10
X A	WO 2002/59999 A1(宇部興産株式会社) 2002. 08. 01, 第2頁, 第1行 ~第3頁, 第15行, 及び, 第6頁, 第18~37行 (ファミリー なし)	1-5, 7-9, 11 6, 10

C欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

10. 06. 2005

国際調査報告の発送日

28. 6. 2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

青木 千歌子

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

4X

9351

第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 _____ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 _____ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 _____ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるとこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1-12に共通する技術事項である「tert-アルキルベンゼン化合物」が、「特別な技術的特徴」となり得るか検討すると、明細書の[0005]段落にはtert-アルキルベンゼン化合物は特開2002-298909号公報等により周知であることが記載されており、新規な特徴ではないから「特別な技術的特徴」とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲1-12に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」は存在せず、発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかであり、請求の範囲1-11と請求の範囲12に区分される2つの発明が記載されていると認める。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☐ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☒ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

請求の範囲1-11

追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY (Chapter I of the Patent Cooperation Treaty)

(PCT Rule 44bis)

Applicant's or agent's file reference YY8301	FOR FURTHER ACTION		See item 4 below
International application No. PCT/JP2005/005022	International filing date (<i>day/month/year</i>) 18 March 2005 (18.03.2005)	Priority date (<i>day/month/year</i>) 19 March 2004 (19.03.2004)	
International Patent Classification (8th edition unless older edition indicated) See relevant information in Form PCT/ISA/237			
Applicant UBE INDUSTRIES, LTD.			

1.	This international preliminary report on patentability (Chapter I) is issued by the International Bureau on behalf of the International Searching Authority under Rule 44 bis.1(a).																								
2.	This REPORT consists of a total of 8 sheets, including this cover sheet. In the attached sheets, any reference to the written opinion of the International Searching Authority should be read as a reference to the international preliminary report on patentability (Chapter I) instead.																								
3.	<p>This report contains indications relating to the following items:</p> <table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 15%; text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td style="width: 35%;">Box No. I</td> <td style="width: 50%;">Basis of the report</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. II</td> <td>Priority</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td>Box No. III</td> <td>Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td>Box No. IV</td> <td>Lack of unity of invention</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td>Box No. V</td> <td>Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. VI</td> <td>Certain documents cited</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. VII</td> <td>Certain defects in the international application</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. VIII</td> <td>Certain observations on the international application</td> </tr> </table>	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. I	Basis of the report	<input type="checkbox"/>	Box No. II	Priority	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. III	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. IV	Lack of unity of invention	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. V	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement	<input type="checkbox"/>	Box No. VI	Certain documents cited	<input type="checkbox"/>	Box No. VII	Certain defects in the international application	<input type="checkbox"/>	Box No. VIII	Certain observations on the international application
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. I	Basis of the report																							
<input type="checkbox"/>	Box No. II	Priority																							
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. III	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability																							
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. IV	Lack of unity of invention																							
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. V	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement																							
<input type="checkbox"/>	Box No. VI	Certain documents cited																							
<input type="checkbox"/>	Box No. VII	Certain defects in the international application																							
<input type="checkbox"/>	Box No. VIII	Certain observations on the international application																							
4.	The International Bureau will communicate this report to designated Offices in accordance with Rules 44bis.3(c) and 93bis.1 but not, except where the applicant makes an express request under Article 23(2), before the expiration of 30 months from the priority date (Rule 44bis .2).																								

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. +41 22 338 82 70	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="padding: 2px;">Date of issuance of this report 14 November 2006 (14.11.2006)</td> </tr> <tr> <td style="padding: 2px;">Authorized officer Yoshiko Kuwahara e-mail: pt07@wipo.int</td> </tr> </table>	Date of issuance of this report 14 November 2006 (14.11.2006)	Authorized officer Yoshiko Kuwahara e-mail: pt07@wipo.int
Date of issuance of this report 14 November 2006 (14.11.2006)			
Authorized officer Yoshiko Kuwahara e-mail: pt07@wipo.int			

PATENT COOPERATION TREATY

From the
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

To:

TRANSLATION
PCT

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

(PCT Rule 43bis.1)

Date of mailing (day/month/year) 28.06.2005		
Applicant's or agent's file reference YY8301	FOR FURTHER ACTION See paragraph 2 below	
International application No. PCT/JP2005/005022	International filing date (day/month/year) 18.03.2005	Priority date (day/month/year) 19.03.2004
International Patent Classification (IPC) or both national classification and IPC H01M10/40, C07C7/148, 15/02		
Applicant UBE INDUSTRIES, LTD.		

1. This opinion contains indications relating to the following items:

- | | | |
|-------------------------------------|--------------|--|
| <input checked="" type="checkbox"/> | Box No. I | Basis of the opinion |
| <input type="checkbox"/> | Box No. II | Priority |
| <input checked="" type="checkbox"/> | Box No. III | Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability |
| <input checked="" type="checkbox"/> | Box No. IV | Lack of unity of invention |
| <input checked="" type="checkbox"/> | Box No. V | Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement |
| <input type="checkbox"/> | Box No. VI | Certain documents cited |
| <input type="checkbox"/> | Box No. VII | Certain defects in the international application |
| <input type="checkbox"/> | Box No. VIII | Certain observations on the international application |

2. FURTHER ACTION

If a demand for international preliminary examination is made, this opinion will be considered to be a written opinion of the International Preliminary Examining Authority ("IPEA") except that this does not apply where the applicant chooses an Authority other than this one to be the IPEA and the chosen IPEA has notified the International Bureau under Rule 66.1bis(b) that written opinions of this International Searching Authority will not be so considered.

If this opinion is, as provided above, considered to be a written opinion of the IPEA, the applicant is invited to submit to the IPEA a written reply together, where appropriate, with amendments, before the expiration of 3 months from the date of mailing of Form PCT/ISA/220 or before the expiration of 22 months from the priority date, whichever expires later.

For further options, see Form PCT/ISA/220.

3. For further details, see notes to Form PCT/ISA/220.

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. 1 Basis of this opinion

1. With regard to the language, this opinion has been established on the basis of the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.
☐ This opinion has been established on the basis of a translation from the original language into the following language
_____, which is the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 12.3 and 23.1(b)).
2. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application and necessary to the claimed invention, this opinion has been established on the basis of:
 - a. type of material
☐ a sequence listing
☐ table(s) related to the sequence listing
 - b. format of material
☐ in written format
☐ in computer readable form
 - c. time of filing/furnishing
☐ contained in the international application as filed.
☐ filed together with the international application in computer readable form.
☐ furnished subsequently to this Authority for the purposes of search.
3. ☐ In addition, in the case that more than one version or copy of a sequence listing and/or table(s) relating thereto has been filed or furnished, the required statements that the information in the subsequent or additional copies is identical to that in the application as filed or does not go beyond the application as filed, as appropriate, were furnished.
4. Additional comments:

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. III

Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

The questions whether the claimed invention appears to be novel, to involve an inventive step (to be non obvious), or to be industrially applicable have not been examined in respect of:

☐ the entire international application

☒ claims Nos. 12

because:

☐ the said international application, or the said claims Nos. _____
relate to the following subject matter which does not require an international preliminary examination (*specify*):

☐ the description, claims or drawings (*indicate particular elements below*) or said claims Nos. _____
are so unclear that no meaningful opinion could be formed (*specify*):

☐ the claims, or said claims Nos. _____ are so inadequately supported
by the description that no meaningful opinion could be formed.

☒ no international search report has been established for said claims Nos. 12

☐ the nucleotide and/or amino acid sequence listing does not comply with the standard provided for in Annex C of the Administrative Instructions in that:

the written form

☐ has not been furnished

☐ does not comply with the standard

the computer readable form

☐ has not been furnished

☐ does not comply with the standard

☐ the tables related to the nucleotide and/or amino acid sequence listing, if in computer readable form only, do not comply with the technical requirements provided for in Annex C-bis of the Administrative Instructions.

☐ See Supplemental Box for further details.

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. IV Lack of unity of invention

1. ☐ In response to the invitation (Form PCT/ISA/206) to pay additional fees the applicant has:
- ☐ paid additional fees
 - ☐ paid additional fees under protest
 - ☒ not paid additional fees
2. ☐ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose not to invite the applicant to pay additional fees.
3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is
- ☐ complied with
 - ☒ not complied with for the following reasons:

Where a group of inventions is claimed, the requirement of unity of invention shall be fulfilled only when there is a "special technical feature" which so links the group of inventions as to form a single general inventive concept.

Accordingly, it was investigated whether "a tert-alkylbenzene compound", which is the technical feature common to claims 1-12, can be a "special technical feature", and since paragraph [0005] of the description states that tert-alkylbenzene compounds are well-known from documents such as JP 2002-298909 A, these are not novel and thus cannot be a "special technical feature".

[continued in the Supplemental Box]

4. Consequently, this opinion has been established in respect of the following parts of the international application:
- ☐ all parts
 - ☒ the parts relating to claims Nos. 1-11

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. V Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

1. Statement

Novelty (N)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	6, 10	YES
	Claims	1-5, 7-9, 11	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO

2. Citations and explanations:

Document 1: JP 2004-63367 A (Ube Industries, Ltd), 26 February 2004; claims and paragraph [0016]
Document 2: WO 2002/59999 Ai (Ube Industries, Ltd.), 1 August 2002; page 2, line 1 to page 3, line 15; and page 6, lines 18 to 37

Claims 1-5, 8-9 and 11 do not involve an inventive step in the light of document 1 cited in the international search report.

Document 1 discloses non-aqueous electrolytes which include *tert*-butylbenzene, *tert*-pentylbenzene, 1,3-di-*tert*-butylbenzene, 1,4-di-*tert*-butylbenzene, 1,3-di-*tert*-pentylbenzene and 1,4-di-*tert*-pentylbenzene at 0.1-10 wt%, and lithium secondary batteries using the same.

A person skilled in the art could easily make the *tert*-alkylbenzenes used in the invention disclosed in document 1 highly pure with a low content of impurities.

Claims 1-5, 7-9 and 11 do not involve an inventive step in the light of document cited in the international search report.

Document 2 discloses non-aqueous electrolytes which include a *tert*-alkylbenzene compound at 0.1-10 wt% and a

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. V

Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
citations and explanations supporting such statement

biphenyl compound at 0.1-1.5 wt%, and discloses *tert*-butylbenzene, *tert*-pentylbenzene, 1,3-di-*tert*-butylbenzene, 1,4-di-*tert*-butylbenzene, 1,3-di-*tert*-pentylbenzene and 1,4-di-*tert*-pentylbenzene as *tert*-alkylbenzene compounds and 4-*tert*-butylbiphenyl as a biphenyl compound.

A person skilled in the art could easily make the *tert*-alkylbenzene compounds used in the invention disclosed in document 2 highly pure with a low content of impurities.

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Supplemental Box

In case the space in any of the preceding boxes is not sufficient.

Continuation of: IV. 3

Consequently, there is no "special technical feature" so linking the group of inventions set forth in claims 1-12 as to form a single general inventive concept, and the requirement of unity of invention is clearly not satisfied.

After then investigating the number of groups of inventions set forth in the claims of this international application which are so linked to form a general inventive concept, it is deemed that two groups of inventions are disclosed, classed as:

- claim 1, and claims 2-11 referring thereunto, and
- claim 12.

PATENT COOPERATION TREATY

TRANSLATION

From the
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

PCT

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

(PCT Rule 43bis.1)

To:

Date of mailing (day/month/year) **28.06.2005**

Applicant's or agent's file reference
YY8301

FOR FURTHER ACTION

See paragraph 2 below

International application No.

PCT/JP2005/005022

International filing date (day/month/year)

18.03.2005

Priority date (day/month/year)

19.03.2004

International Patent Classification (IPC) or both national classification and IPC

H01M10/40, C07C7/148, 15/02

Applicant

UBE INDUSTRIES, LTD.

1. This opinion contains indications relating to the following items:

- ☒ Box No. I Basis of the opinion
- ☐ Box No. II Priority
- ☒ Box No. III Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability
- ☒ Box No. IV Lack of unity of invention
- ☒ Box No. V Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement
- ☐ Box No. VI Certain documents cited
- ☐ Box No. VII Certain defects in the international application
- ☐ Box No. VIII Certain observations on the international application

2. **FURTHER ACTION**

If a demand for international preliminary examination is made, this opinion will be considered to be a written opinion of the International Preliminary Examining Authority ("IPEA") except that this does not apply where the applicant chooses an Authority other than this one to be the IPEA and the chosen IPEA has notified the International Bureau under Rule 66.1bis(b) that written opinions of this International Searching Authority will not be so considered.

If this opinion is, as provided above, considered to be a written opinion of the IPEA, the applicant is invited to submit to the IPEA a written reply together, where appropriate, with amendments, before the expiration of 3 months from the date of mailing of Form PCT/ISA/220 or before the expiration of 22 months from the priority date, whichever expires later.

For further options, see Form PCT/ISA/220.

3. For further details, see notes to Form PCT/ISA/220.

Name and mailing address of the ISA/JP

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. 1

Basis of this opinion

1. With regard to the language, this opinion has been established on the basis of the international application in the language in which it was filed, unless otherwise indicated under this item.
☐ This opinion has been established on the basis of a translation from the original language into the following language
_____, which is the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 12.3 and 23.1(b)).
2. With regard to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international application and necessary to the claimed invention, this opinion has been established on the basis of:
 - a. type of material
☐ a sequence listing
☐ table(s) related to the sequence listing
 - b. format of material
☐ in written format
☐ in computer readable form
 - c. time of filing/furnishing
☐ contained in the international application as filed.
☐ filed together with the international application in computer readable form.
☐ furnished subsequently to this Authority for the purposes of search.
3. ☐ In addition, in the case that more than one version or copy of a sequence listing and/or table(s) relating thereto has been filed or furnished, the required statements that the information in the subsequent or additional copies is identical to that in the application as filed or does not go beyond the application as filed, as appropriate, were furnished.
4. Additional comments:

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. III

Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability

The questions whether the claimed invention appears to be novel, to involve an inventive step (to be non obvious), or to be industrially applicable have not been examined in respect of:

☐ the entire international application

☒ claims Nos. 12

because:

☐ the said international application, or the said claims Nos. _____
relate to the following subject matter which does not require an international preliminary examination (*specify*):

☐ the description, claims or drawings (*indicate particular elements below*) or said claims Nos. _____
are so unclear that no meaningful opinion could be formed (*specify*):

☐ the claims, or said claims Nos. _____ are so inadequately supported
by the description that no meaningful opinion could be formed.

☒ no international search report has been established for said claims Nos. 12

☐ the nucleotide and/or amino acid sequence listing does not comply with the standard provided for in Annex C of the Administrative Instructions in that:

the written form

☐ has not been furnished

☐ does not comply with the standard

the computer readable form

☐ has not been furnished

☐ does not comply with the standard

☐ the tables related to the nucleotide and/or amino acid sequence listing, if in computer readable form only, do not comply with the technical requirements provided for in Annex C-bis of the Administrative Instructions.

☐ See Supplemental Box for further details.

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. IV

Lack of unity of invention

1. ☐ In response to the invitation (Form PCT/ISA/206) to pay additional fees the applicant has:

☐ paid additional fees

☐ paid additional fees under protest

☒ not paid additional fees

2. ☐ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose not to invite the applicant to pay additional fees.

3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is

☐ complied with

☒ not complied with for the following reasons:

Where a group of inventions is claimed, the requirement of unity of invention shall be fulfilled only when there is a "special technical feature" which so links the group of inventions as to form a single general inventive concept.

Accordingly, it was investigated whether "a *tert*-alkylbenzene compound", which is the technical feature common to claims 1-12, can be a "special technical feature", and since paragraph [0005] of the description states that *tert*-alkylbenzene compounds are well-known from documents such as JP 2002-298909 A, these are not novel and thus cannot be a "special technical feature".

[continued in the Supplemental Box]

4. Consequently, this opinion has been established in respect of the following parts of the international application:

☐ all parts

☒ the parts relating to claims Nos. 1-11

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. V	Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement		
1. Statement			
Novelty (N)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO
Inventive step (IS)	Claims	6, 10	YES
	Claims	1-5, 7-9, 11	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1-11	YES
	Claims		NO
2. Citations and explanations:			
<p>Document 1: JP 2004-63367 A (Ube Industries, Ltd), 26 February 2004; claims and paragraph [0016]</p> <p>Document 2: WO 2002/59999 Ai (Ube Industries, Ltd.), 1 August 2002; page 2, line 1 to page 3, line 15; and page 6, lines 18 to 37</p> <p>Claims 1-5, 8-9 and 11 do not involve an inventive step in the light of document 1 cited in the international search report.</p> <p>Document 1 discloses non-aqueous electrolytes which include <i>tert</i>-butylbenzene, <i>tert</i>-pentylbenzene, 1,3-di-<i>tert</i>-butylbenzene, 1,4-di-<i>tert</i>-butylbenzene, 1,3-di-<i>tert</i>-pentylbenzene and 1,4-di-<i>tert</i>-pentylbenzene at 0.1-10 wt%, and lithium secondary batteries using the same.</p> <p>A person skilled in the art could easily make the <i>tert</i>-alkylbenzenes used in the invention disclosed in document 1 highly pure with a low content of impurities.</p> <p>Claims 1-5, 7-9 and 11 do not involve an inventive step in the light of document cited in the international search report.</p> <p>Document 2 discloses non-aqueous electrolytes which include a <i>tert</i>-alkylbenzene compound at 0.1-10 wt% and a</p>			

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Box No. V

Reasoned statement under Rule 43bis.1(a)(i) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability;
citations and explanations supporting such statement

biphenyl compound at 0.1-1.5 wt%, and discloses *tert*-butylbenzene, *tert*-pentylbenzene, 1,3-di-*tert*-butylbenzene, 1,4-di-*tert*-butylbenzene, 1,3-di-*tert*-pentylbenzene and 1,4-di-*tert*-pentylbenzene as *tert*-alkylbenzene compounds and 4-*tert*-butylbiphenyl as a biphenyl compound.

A person skilled in the art could easily make the *tert*-alkylbenzene compounds used in the invention disclosed in document 2 highly pure with a low content of impurities.

WRITTEN OPINION OF THE
INTERNATIONAL SEARCHING AUTHORITY

International application No.

PCT/JP2005/005022

Supplemental Box

In case the space in any of the preceding boxes is not sufficient.

Continuation of: IV. 3

Consequently, there is no "special technical feature" so linking the group of inventions set forth in claims 1-12 as to form a single general inventive concept, and the requirement of unity of invention is clearly not satisfied.

After then investigating the number of groups of inventions set forth in the claims of this international application which are so linked to form a general inventive concept, it is deemed that two groups of inventions are disclosed, classed as:

- claim 1, and claims 2-11 referring thereunto, and
- claim 12.

PATENT COOPERATION TREATY

PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY REPORT ON PATENTABILITY (Chapter I of the Patent Cooperation Treaty)

(PCT Rule 44bis)

Applicant's or agent's file reference YY8301	FOR FURTHER ACTION	See item 4 below
International application No. PCT/JP2005/005022	International filing date (<i>day/month/year</i>) 18 March 2005 (18.03.2005)	Priority date (<i>day/month/year</i>) 19 March 2004 (19.03.2004)
International Patent Classification (8th edition unless older edition indicated) See relevant information in Form PCT/ISA/237		
Applicant UBE INDUSTRIES, LTD.		

1.	This international preliminary report on patentability (Chapter I) is issued by the International Bureau on behalf of the International Searching Authority under Rule 44 bis.1(a).																								
2.	This REPORT consists of a total of 6 sheets, including this cover sheet. In the attached sheets, any reference to the written opinion of the International Searching Authority should be read as a reference to the international preliminary report on patentability (Chapter I) instead.																								
3.	<p>This report contains indications relating to the following items:</p> <table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 10%; text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td style="width: 30%;">Box No. I</td> <td style="width: 60%;">Basis of the report</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. II</td> <td>Priority</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td>Box No. III</td> <td>Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td>Box No. IV</td> <td>Lack of unity of invention</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input checked="" type="checkbox"/></td> <td>Box No. V</td> <td>Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. VI</td> <td>Certain documents cited</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. VII</td> <td>Certain defects in the international application</td> </tr> <tr> <td style="text-align: center;"><input type="checkbox"/></td> <td>Box No. VIII</td> <td>Certain observations on the international application</td> </tr> </table>	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. I	Basis of the report	<input type="checkbox"/>	Box No. II	Priority	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. III	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. IV	Lack of unity of invention	<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. V	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement	<input type="checkbox"/>	Box No. VI	Certain documents cited	<input type="checkbox"/>	Box No. VII	Certain defects in the international application	<input type="checkbox"/>	Box No. VIII	Certain observations on the international application
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. I	Basis of the report																							
<input type="checkbox"/>	Box No. II	Priority																							
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. III	Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability																							
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. IV	Lack of unity of invention																							
<input checked="" type="checkbox"/>	Box No. V	Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement																							
<input type="checkbox"/>	Box No. VI	Certain documents cited																							
<input type="checkbox"/>	Box No. VII	Certain defects in the international application																							
<input type="checkbox"/>	Box No. VIII	Certain observations on the international application																							
4.	The International Bureau will communicate this report to designated Offices in accordance with Rules 44bis.3(c) and 93bis.1 but not, except where the applicant makes an express request under Article 23(2), before the expiration of 30 months from the priority date (Rule 44bis .2).																								

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No. +41 22 338 82 70	Date of issuance of this report 19 September 2006 (19.09.2006) Authorized officer <p style="text-align: center; font-weight: bold;">Yoshiko Kuwahara</p> e-mail: pt07@wipo.int
---	---

特許協力条約

発信人 日本国特許庁 (国際調査機関)

REC'D 30 JUN 2005

WIPO

PCT

代理人

柳川 泰男

様

あて名

〒160-0004

日本国東京都新宿区四谷 2-14 ミツヤ四谷ビル
8 階

PCT
国際調査機関の見解書
(法施行規則第 40 条の 2)
[PCT 規則 43 の 2.1]

発送日
(日.月.年)

28. 6. 2005

出願人又は代理人

の書類記号 YY8301

今後の手続きについては、下記 2 を参照すること。

国際出願番号

PCT/J P 2005/005022

国際出願日

(日.月.年) 18. 03. 2005

優先日

(日.月.年) 19. 03. 2004

国際特許分類 (IPC) IntCl.⁷ H01M10/40, C07C7/148, 15/02

出願人 (氏名又は名称)

宇部興産株式会社

1. この見解書は次の内容を含む。

- ☒ 第 I 欄 見解の基礎
- ☒ 第 II 欄 優先権
- ☒ 第 III 欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成
- ☒ 第 IV 欄 発明の単一性の欠如
- ☒ 第 V 欄 PCT 規則 43 の 2.1(a)(i) に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- ☐ 第 VI 欄 ある種の引用文献
- ☐ 第 VII 欄 国際出願の不備
- ☐ 第 VIII 欄 国際出願に対する意見

2. 今後の手続き

国際予備審査の請求がされた場合は、出願人がこの国際調査機関とは異なる国際予備審査機関を選択し、かつ、その国際予備審査機関が PCT 規 66.1 の 2(b) の規定に基づいて国際調査機関の見解書を国際予備審査機関の見解書とみなさない旨を国際事務局に通知していた場合を除いて、この見解書は国際予備審査機関の最初の見解書とみなされる。

この見解書が上記のように国際予備審査機関の見解書とみなされる場合、様式 PCT/ISA/220 を送付した日から 3 月又は優先日から 2 2 月のうちいずれか遅く満了する期限が経過するまでに、出願人は国際予備審査機関に、適当な場合は補正書とともに、答弁書を提出することができる。

さらなる選択肢は、様式 PCT/ISA/220 を参照すること。

3. さらなる詳細は、様式 PCT/ISA/220 の備考を参照すること。

見解書を作成した日

10. 06. 2005

名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P).
郵便番号 100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

青木 千歌子

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

4 X

9351

様式 PCT/ISA/237 (表紙) (2004 年 1 月)

第 I 欄 見解の基礎

1. この見解書は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎として作成された。

☐ この見解書は、_____語による翻訳文を基礎として作成した。
それは国際調査のために提出された PCT 規則 12.3 及び 23.1(b) にいう翻訳文の言語である。

2. この国際出願で開示されかつ請求の範囲に係る発明に不可欠なヌクレオチド又はアミノ酸配列に関して、
以下に基づき見解書を作成した。

a. タイプ ☐ 配列表

☐ 配列表に関連するテーブル

b. フォーマット ☐ 書面

☐ コンピュータ読み取り可能な形式

c. 提出時期

☐ 出願時の国際出願に含まれる

☐ この国際出願と共にコンピュータ読み取り可能な形式により提出された

☐ 出願後に、調査のために、この国際調査機関に提出された

3. ☐ さらに、配列表又は配列表に関連するテーブルを提出した場合に、出願後に提出した配列若しくは追加して提出した配列が出願時に提出した配列と同一である旨、又は、出願時の開示を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

4. 補足意見：

第Ⅲ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成

次に関して、当該請求の範囲に記載されている発明の新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につき、次の理由により審査しない。

☐ 国際出願全体

☒ 請求の範囲 1 2

理由：

☐ この国際出願又は請求の範囲 _____ は、国際予備審査をすることを要しない次の事項を内容としている（具体的に記載すること）。

☐ 明細書、請求の範囲若しくは図面（次に示す部分）又は請求の範囲 _____ の記載が不明確であるため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

☐ 全部の請求の範囲又は請求の範囲 _____ が、明細書による十分な裏付けを欠くため、見解を示すことができない。

☒ 請求の範囲 1 2 _____ について、国際調査報告が作成されていない。

☐ ヌクレオチド又はアミノ酸の配列表が、実施細則の附属書C（塩基配列又はアミノ酸配列を含む明細書等の作成のためのガイドライン）に定める基準を、次の点で満たしていない。

書面による配列表が

☐ 提出されていない。

☐ 所定の基準を満たしていない。

コンピュータ読み取り可能な形式による配列表が

☐ 提出されていない。

☐ 所定の基準を満たしていない。

☐ コンピュータ読み取り可能な形式によるヌクレオチド又はアミノ酸の配列表に関連するテーブルが、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を、次の点で満たしていない。

☐ 提出されていない。

☐ 所定の技術的な要件を満たしていない。

☐ 詳細については補充欄を参照すること。

第IV欄 発明の単一性の欠如

1. 追加手数料納付の求め（様式PCT/ISA/206）に対して、出願人は、

☐ 追加手数料を納付した。

☐ 追加手数料の納付と共に異議を申立てた。

☒ 追加手数料の納付はなかった。

2. ☐ 国際調査機関は、発明の単一性の要件を満たしていないと判断したが、追加手数料の納付を出願人に求めないこととした。

3. 国際調査機関は、PCT規則 13.1、13.2 及び 13.3 に規定する発明の単一性を次のように判断する。

☐ 満足する。

☒ 以下の理由により満足しない。

請求の範囲に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たすためには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」の存在が必要である。

そこで、請求の範囲 1-12 に共通する技術事項である「tert-アルキルベンゼン化合物」が、「特別な技術的特徴」となり得るか検討すると、明細書の [0005] 段落には tert-アルキルベンゼン化合物特開 2002-298909 号公報等により周知であることが記載されており、新規な特徴ではないから「特別な技術的特徴」とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲 1-12 に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」は存在せず、発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。

そして、この国際出願の請求の範囲に記載されている一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数について検討すると、

・請求の範囲 1、それを引用する請求の範囲 2-11

・請求の範囲 12

に区分される 2 つの発明が記載されていると認める。

4. したがって、国際出願の次の部分について、この見解書を作成した。

☐ すべての部分

☒ 請求の範囲 1-11

に関する部分

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についてのPCT規則43の2.1(a)(i)に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1-11	有
	請求の範囲		無
進歩性 (IS)	請求の範囲	6, 10	有
	請求の範囲	1-5, 7-9, 11	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1-11	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明

文献1: JP 2004-63367 A(宇部興産株式会社) 2004. 02. 26, 【特許請求の範囲】, 【0016】

文献2: WO 2002/59999 A1(宇部興産株式会社) 2002. 08. 01, 第2頁, 第1行~第3頁,
第15行, 及び, 第6頁, 第18~37行

請求の範囲1-5, 8-9, 11は、国際調査報告で引用した文献1により、進歩性を有しない。

文献1には、tert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ペンチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ペンチルベンゼンを0.1~10重量%含む非水電解液とそれを用いたリチウム二次電池が教示されている。

文献1に教示された発明において、そこで用いられるtert-アルキルベンゼンを高純度で不純分含有量の少ないものとすることは、当業者にとって容易である。

請求の範囲1-5, 7-9, 11は、国際調査報告で引用した文献2により、進歩性を有しない。

文献2には、0.1~10重量%のtert-アルキルベンゼン化合物および0.1~1.5重量%のビフェニル化合物を含む非水電解液が教示され、tert-アルキルベンゼン化合物としてtert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ペンチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ペンチルベンゼン等が、ビフェニル化合物として4-tert-ブチルビフェニルが教示されている。

文献2に教示された発明において、そこで用いられるtert-アルキルベンゼン化合物及びビフェニル化合物を高純度で不純分含有量の少ないものとすることは、当業者にとって容易である。

特許協力条約

発信人 日本国特許庁 (国際調査機関)

REC'D 30 JUN 2005

WIPO

PCT

代理人

柳川 泰男

様

あて名

〒160-0004

日本国東京都新宿区四谷2-14ミツヤ四谷ビル
8階

PCT
国際調査機関の見解書
(法施行規則第40条の2)
[PCT規則43の2.1]

発送日
(日.月.年)

28. 6. 2005

出願人又は代理人

の書類記号 YY8301

今後の手続きについては、下記2を参照すること。

国際出願番号

PCT/JP2005/005022

国際出願日

(日.月.年) 18. 03. 2005

優先日

(日.月.年) 19. 03. 2004

国際特許分類 (IPC) IntCl.⁷ H01M10/40, C07C7/148, 15/02

出願人 (氏名又は名称)

宇部興産株式会社

1. この見解書は次の内容を含む。

- ☒ 第I欄 見解の基礎
- ☒ 第II欄 優先権
- ☒ 第III欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成
- ☒ 第IV欄 発明の単一性の欠如
- ☒ 第V欄 PCT規則43の2.1(a)(i)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- ☐ 第VI欄 ある種の引用文献
- ☐ 第VII欄 国際出願の不備
- ☐ 第VIII欄 国際出願に対する意見

2. 今後の手続き

国際予備審査の請求がされた場合は、出願人がこの国際調査機関とは異なる国際予備審査機関を選択し、かつ、その国際予備審査機関がPCT規66.1の2(b)の規定に基づいて国際調査機関の見解書を国際予備審査機関の見解書とみなさない旨を国際事務局に通知していた場合を除いて、この見解書は国際予備審査機関の最初の見解書とみなされる。

この見解書が上記のように国際予備審査機関の見解書とみなされる場合、様式PCT/ISA/220を送付した日から3月又は優先日から22月のうちいずれか遅く満了する期限が経過するまでに、出願人は国際予備審査機関に、適当な場合は補正書とともに、答弁書を提出することができる。

さらなる選択肢は、様式PCT/ISA/220を参照すること。

3. さらなる詳細は、様式PCT/ISA/220の備考を参照すること。

見解書を作成した日

10. 06. 2005

名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)
郵便番号100-8915
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

青木 千歌子

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

4X

9351

様式PCT/ISA/237 (表紙) (2004年1月)

第I欄 見解の基礎

1. この見解書は、下記に示す場合を除くほか、国際出願の言語を基礎として作成された。

☐ この見解書は、_____語による翻訳文を基礎として作成した。
それは国際調査のために提出されたPCT規則12.3及び23.1(b)にいう翻訳文の言語である。

2. この国際出願で開示されかつ請求の範囲に係る発明に不可欠なヌクレオチド又はアミノ酸配列に関して、以下に基づき見解書を作成した。

a. タイプ ☐ 配列表

☐ 配列表に関連するテーブル

b. フォーマット ☐ 書面

☐ コンピュータ読み取り可能な形式

c. 提出時期 ☐ 出願時の国際出願に含まれる

☐ この国際出願と共にコンピュータ読み取り可能な形式により提出された

☐ 出願後に、調査のために、この国際調査機関に提出された

3. ☐ さらに、配列表又は配列表に関連するテーブルを提出した場合に、出願後に提出した配列若しくは追加して提出した配列が出願時に提出した配列と同一である旨、又は、出願時の開示を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

4. 補足意見：

第Ⅲ欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解の不作成

次に関して、当該請求の範囲に記載されている発明の新規性、進歩性又は産業上の利用可能性につき、次の理由により審査しない。

☐ 国際出願全体

☒ 請求の範囲 1 2

理由：

☐ この国際出願又は請求の範囲 _____ は、国際予備審査をすることを要しない次の事項を内容としている（具体的に記載すること）。

☐ 明細書、請求の範囲若しくは図面（次に示す部分）又は請求の範囲 _____ の記載が不明確であるため、見解を示すことができない（具体的に記載すること）。

☐ 全部の請求の範囲又は請求の範囲 _____ が、明細書による十分な裏付けを欠くため、見解を示すことができない。

☒ 請求の範囲 1 2 _____ について、国際調査報告が作成されていない。

☐ ヌクレオチド又はアミノ酸の配列表が、実施細則の附属書C（塩基配列又はアミノ酸配列を含む明細書等の作成のためのガイドライン）に定める基準を、次の点で満たしていない。

書面による配列表が

☐ 提出されていない。

☐ 所定の基準を満たしていない。

コンピュータ読み取り可能な形式による配列表が

☐ 提出されていない。

☐ 所定の基準を満たしていない。

☐ コンピュータ読み取り可能な形式によるヌクレオチド又はアミノ酸の配列表に関連するテーブルが、実施細則の附属書Cの2に定める技術的な要件を、次の点で満たしていない。

☐ 提出されていない。

☐ 所定の技術的な要件を満たしていない。

☐ 詳細については補充欄を参照すること。

第IV欄 発明の単一性の欠如

1. 追加手数料納付の求め（様式PCT/ISA/206）に対して、出願人は、

- ☐ 追加手数料を納付した。
- ☐ 追加手数料の納付と共に異議を申立てた。
- ☒ 追加手数料の納付はなかった。

2. ☐ 国際調査機関は、発明の単一性の要件を満たしていないと判断したが、追加手数料の納付を出願人に求めないこととした。

3. 国際調査機関は、PCT規則 13.1、13.2 及び 13.3 に規定する発明の単一性を次のように判断する。

- ☐ 満足する。
- ☒ 以下の理由により満足しない。

請求の範囲に記載されている一群の発明が発明の単一性の要件を満たすためには、その一群の発明を単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」の存在が必要である。

そこで、請求の範囲 1-12 に共通する技術事項である「tert-アルキルベンゼン化合物」が、「特別な技術的特徴」となり得るか検討すると、明細書の [0005] 段落には tert-アルキルベンゼン化合物特開 2002-298909 号公報等により周知であることが記載されており、新規な特徴ではないから「特別な技術的特徴」とはなり得ない。

そうすると、請求の範囲 1-12 に記載されている一群の発明の間には、単一の一般的発明概念を形成するように連関させる「特別な技術的特徴」は存在せず、発明の単一性の要件を満たしていないことが明らかである。

そして、この国際出願の請求の範囲に記載されている一般的発明概念を形成するように連関している発明の群の数について検討すると、

- ・請求の範囲 1、それを引用する請求の範囲 2-11
- ・請求の範囲 12

に区分される 2 つの発明が記載されていると認める。

4. したがって、国際出願の次の部分について、この見解書を作成した。

- ☐ すべての部分
- ☒ 請求の範囲 1-11 に関する部分

第V欄 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についてのPCT規則43の2.1(a)(i)に定める見解、
それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1-11	有
	請求の範囲		無
進歩性 (IS)	請求の範囲	6, 10	有
	請求の範囲	1-5, 7-9, 11	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1-11	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明

文献1: JP 2004-63367 A(宇部興産株式会社) 2004. 02. 26, 【特許請求の範囲】、【0016】
 文献2: WO 2002/59999 A1(宇部興産株式会社) 2002. 08. 01, 第2頁, 第1行~第3頁,
 第15行, 及び, 第6頁, 第18~37行

請求の範囲1-5, 8-9, 11は、国際調査報告で引用した文献1により、進歩性を有しない。

文献1には、tert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ペンチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ペンチルベンゼンを0.1~10重量%含む非水電解液とそれを用いたりチウム二次電池が教示されている。

文献1に教示された発明において、そこで用いられるtert-アルキルベンゼンを高純度で不純分含有量の少ないものとすることは、当業者にとって容易である。

請求の範囲1-5, 7-9, 11は、国際調査報告で引用した文献2により、進歩性を有しない。

文献2には、0.1~10重量%のtert-アルキルベンゼン化合物および0.1~1.5重量%のビフェニル化合物を含む非水電解液が教示され、tert-アルキルベンゼン化合物としてtert-ブチルベンゼン、tert-ペンチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ブチルベンゼン、1,3-ジ-tert-ペンチルベンゼン、1,4-ジ-tert-ペンチルベンゼン等が、ビフェニル化合物として4-tert-ブチルビフェニルが教示されている。

文献2に教示された発明において、そこで用いられるtert-アルキルベンゼン化合物及びビフェニル化合物を高純度で不純分含有量の少ないものとすることは、当業者にとって容易である。